

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 06-256067

(43)Date of publication of application : 13.09.1994

(51)Int.Cl. C04B 37/00

(21)Application number : 05-065909 (71)Applicant : TOSHIBA CERAMICS CO LTD

(22)Date of filing : 03.03.1993 (72)Inventor : SHINPO MASARU

## (54) COMPOUND FOR JOINING CERAMIC

### (57)Abstract:

PURPOSE: To provide a compound for joining ceramics, capable of strongly joining the various ceramics in a simple process, and capable of forming joined layers and joined products having sufficient joining strengths also in processes before calcination and in calcination processes and excellent in high purity, heat resistance, high chemical resistance, etc.

CONSTITUTION: A compound used for joining ceramics and formed by kneading a polysilazane compound and a polycarbosilazane compound with ceramic powder and a solvent is used as a joining material for the ceramics, the polysilazane compound and the polycarbosilazane compound being known as the precursors of silicon carbide(SiC) and silicon nitride(SiN).

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 03.02.1997

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3017372

[Date of registration] 24.12.1999

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-256067

(43) 公開日 平成6年(1994)9月13日

(51) Int.Cl.<sup>5</sup>

C 0 4 B 37/00

## 識別記号

序内整理番号

F I

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数 4 FD (全 7 頁)

(21)出願番号	特願平5-65909	(71)出願人	000221122 東芝セラミックス株式会社 東京都新宿区西新宿1丁目26番2号
(22)出願日	平成5年(1993)3月3日	(72)発明者	新保 優 神奈川県秦野市曾屋30 東芝セラミックス 株式会社開発研究所内

(54)【発明の名称】 セラミック接合用コンパウンド

(57) 【要約】

【目的】 種々のセラミックスを簡便な工程で強固に接合でき、焼成前及び焼成過程においても十分な接合強度を有し、且つ、高純度、高耐熱性、高耐薬品性等の優れた接合層及び接合体を形成するセラミック接合用コンパウンドの提供。

【構成】 炭化珪素(SiC)や窒化珪素(Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>)の前駆体として知られているポリシリザン類及びポリカルボシラン類化合物と、セラミック粉末、並びに溶媒を混練して形成されるセラミックス接合用コンパウンドを、セラミックスの接合材とする。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 ポリシラザン化合物、ポリカルボシラン化合物、セラミック粉末及び溶媒からなることを特徴とするセラミック接合用コンパウンド。

【請求項2】 該セラミック粉末が、被接合セラミックスと同種または熱膨張係数が近似する請求項1記載のセラミック接合用コンパウンド。

【請求項3】 該ポリシラザン化合物と該ポリカルボシラン化合物との重量比が1:0.05~4.0である請求項1または2記載のセラミック接合用コンパウンド。

【請求項4】 該ポリシラザン化合物及び該ポリカルボシラン化合物との総量と該セラミック粉末との重量比が1:2~4.0である請求項1、2または3記載のセラミック接合用コンパウンド。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、珪素、炭化珪素、窒化珪素、窒化アルミニウム及びこれらを組合せた複合物等非酸化物セラミックスや、アルミナ、ジルコニア、ムライト等酸化物セラミックスの各種広範囲セラミックスの接合及びそれらの空隙部の充填に適したコンパウンドに関する。

## 【0002】

【従来の技術】 セラミックスは、耐熱性が高く、堅固であり、また、化学的に不活性で、極めて高純度に調製可能である等の長所があり、先端材料として多方面に使われている。これらセラミックスの加工は、通常、焼成前の素材の成形段階等で行うのが一般的である。しかし、セラミック成形体の焼成前後では大きな体積変化が起こるため、焼成前の加工のみで寸法精度を高めることは困難である。そのため、焼成後に目的の形状と精度を得るために再加工することもできるが、セラミックスは、上記のように堅固で脆く加工性が悪いため、その形状や大きさが制限される。

【0003】 また、目的のセラミック形状体を構成するように区分された各部品材を組立てて接合することにより、複雑形状体や大型品を形成することも従来から行われている。この場合、耐熱性、化学的耐久性等に優れるセラミックスの長所を保持しながら、各セラミック焼成部品材を所定形状等に接合できなければ、本来のセラミックスとしての利用価値が損なわれる。そのため、セラミックス接合法として、耐熱性を有する方法も各種実施されている。例えば、はんだガラスによる接合法や、メタライジングによる金属接合法等がある。また、例えばアルミナセメント等のセメント系無機材料の一部も、高耐熱性接合材として使用されている。

## 【0004】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら、上記のはんだガラス接合及び金属接合法のいずれも適用できる材料が限られており、耐熱性や耐蝕性も十分ではなかつ

た。しかも、接合時には高度な技術を必要とする上に、接合部の形状も単純なものに限られている。また、無機材料系接合材は室温で固着できる利点があるが、耐火性とするために、通常1000°C以上の高温で焼成する必要があり、焼成過程で固着力が著しく低減したり、ひび割れ等を発生して破損したりするが多く、極めて限られた材料や用途にしか使用することができなかった。また、無機材料系接合材には、成分や不純物として種々の元素成分を含むことが多く、所定の高純度化を達成できないこともある。

【0005】 本発明は、上記した従来のセラミックスの接合法の現況に鑑み、種々のセラミックスを簡単な工程で強固に接合でき、焼成前及び焼成過程においても十分な接合強度を有し、且つ、高純度、高耐熱性、高耐薬品性等の優れた接合層及び接合体を形成することができるセラミック接合材、即ちセラミック接合用コンパウンドを提供することを目的とし、更に、それにより強固に固着接合されて一体化されたセラミックスの大型品や複雑形状体を簡単に形成することを目的とする。

【0006】 発明者は、上記目的を達成するための接合材としての要件を種々検討し、特に下記の2点が満足されるように鋭意検討した結果、本発明を完成した。即ち、

(1) 接合材が接合時に室温で十分な強度な固着力を発現でき、且つ、その固着力が焼成過程でも保持される接合材であること。即ち、焼成過程で接合部が離脱等するおそれがない上、特別な焼成用治具が不要となる。また、接合体の形状や大きさでの制限を受けることもない。更に、場合によってはセラミック接合体の使用温度を焼成温度域とすることにより、接合後の焼成工程を省略することもできる。

(2) 高純度を要求されるセラミック用接合材としては、例えば遷移金属やアルカリ金属イオン等の汚染物を、その成分や不純物として含まないようにすること。セラミックスは、電子部品や半導体素子製造用部材等高純度を要求される用途が非常に多く、これらの使用においては、原料素材を初めセラミックスの製造工程や加工の段階でも、上記汚染物が混入しないようにする必要がある。従って、接合したセラミック接合体を特に半導体素子の処理に使用する場合には、Si、O、N、C、H等の元素以外はすべて汚染物であり極力低減させる。

## 【0007】

【課題を解決するための手段】 本発明によれば、ポリシラザン化合物、ポリカルボシラン化合物、セラミック粉末及び溶媒からなることを特徴とするセラミック接合用コンパウンドが提供される。

## 【0008】

【作用】 本発明は上記のように構成され、ポリシラザン類やポリカルボシラン類化合物は、所定の溶媒に溶解して粘着性溶液を形成し、その溶液を被接合セラミックス

の接合部に塗布等し、乾燥させることにより容易にセラミックスを固着接合でき、その後の焼成中でも固着力が保持される。また、ポリシラザン類やポリカルボシラン類化合物は、不活性ガスまたは酸素含有ガス雰囲気下で加熱すれば、その雰囲気により  $\text{SiN}$ 、 $\text{SiC}$ 、 $\text{SiO}_2$  等の耐熱性で化学的に安定な化合物を生成し、混在するセラミック粉末と共に堅固な接合層を形成し、セラミックス同士の強固な接合体を得ることができる。また、ポリシラザン類やポリカルボシラン類化合物は、化学的に合成することができ、高純度化が容易であり、半導体等に有害な汚染元素を含まず、半導体部材等各種セラミックスの接合材として、汚染源となることがない。

【0009】以下、本発明について詳細に説明する。本発明で使用するポリシラザン類及びポリカルボシラン類化合物は炭化珪素 ( $\text{SiC}$ ) や窒化珪素 ( $\text{SiN}$ ) の前駆体として良く知られている。ポリシラザン類はペルヒドロポリシラザンの種々の分子量の重合体、メチルポリシラザンの各種重合体等、 $\text{SiN}$  または  $\text{SiC}$  の前駆体として通常用いられる化合物を使用することができる。また、ポリカルボシラン類は  $[\text{RR}'\text{SiCH}_2]^n$  (但し、R 及び R' は、 $\text{R} \neq \text{R}'$  で、H、 $\text{CH}_3$ 、 $\text{C}_6\text{H}_5$  のいずれかである。 $n = 5 \sim 5000$  以上) の一般式で表され、 $\text{SiC}$  の前駆体として従来から用いられている化合物を使用することができる。

【0010】発明者の知見によれば、上記ポリシラザン類及びポリカルボシラン類化合物は、いずれもキシレン等の有機溶媒に溶解した後、溶媒を除去した場合には常温である程度の固着力を生じるが温度上昇により固着力が変化する。即ち、ポリシラザン化合物、ポリカルボシラン化合物及び両者比率約 1 : 1 の混合物のそれについて、温度と固着強度の関係を実験検討した。その結果を図 1 に模式的に示した。図 1 によれば、ポリシラザン化合物の固着力、即ち、接着強度は約 100 ~ 200 °C で殆どなくなるが、200 °C 付近から急激に増大し、500 °C 付近からはその増加率が低下し、900 ~ 1000 °C で再び更に上昇傾向となる。ポリシラザン化合物は室温付近ではその種類や重合度によって固体から粘稠な液体であり、温度が上昇すると低粘性の液体が生成すると共に分解反応が起こり極めて脆いゲルが生成するため、接着強度が低下する。200 °C 以上では重合が進みゲルが固化するため接着強度が上昇するが、500 °C 付近からは熱分解が激しく有機物が多く離脱し残留分が多く孔質化するため、接着強度の上昇が緩慢になる。また、約 900 ~ 1000 °C では熱分解反応が完了し生成した無機化合物の焼結と結晶化が進行し、接着強度が更に急激に上昇するものと推定される。

【0011】一方、ポリカルボシラン化合物は、図 1 に示されるように約 200 ~ 400 °C で固着力が無くなるが、約 400 °C 以上では温度と共に固着力が増加し、6

10 00 °C を越えると強度増加率が小さくなり、ポリシラザン化合物と同様に 900 ~ 1000 °C で再び更に上昇傾向となる。ポリカルボシラン類化合物の殆どは、室温付近で固体であり通常は 200 °C 付近まで安定で固着力が保持される。しかし、200 °C 以上に昇温すると低粘性の液体となり重合反応が起こり始め接着強度が失われるが、400 °C 以上では高分子化していくため温度と共に固着力が増加する。また通常はゲル化反応が起こらないのでポリシラザンの場合より高強度になる。600 °C を越えるとポリシラザンと同様に、固化物の熱分解反応が進行し多孔質化するため強度増加率が低下するが、熱分解反応が完了する約 900 ~ 1000 °C 以上で接着強度が再び温度と共に急激に上昇する。

【0012】また一方、図 1 から明らかなように、ポリシラザン化合物及びポリカルボシラン化合物を単独で使用したときは、それぞれ昇温の途中で固着力が殆ど無くなる温度域が出現するが、本発明のように両者を混合して用いた場合は、ほぼ全温度域で両者の平均値を上回る接着強度が得られることが分かる。その理由は明らかでないが、ポリシラザンの固着力がなくなる 100 ~ 200 °C 付近では、ポリカルボシランは固化あるいは高粘性の液体であるためにポリシラザンのゲル化が妨げられ、また重合反応は高分子化し粘性が増加する方向に進行するため固着力が低減する事がない。また一方、ポリカルボシランの固着力がなくなる 200 ~ 400 °C 付近では、重合、固化したポリシラザンに溶融したポリカルボシランが可塑材として作用し、脆性を補い強度を増大させる。600 °C 以上の高温では、両者の分解温度が異なるため全体としては急激なガス放出が起こらず、構造が破壊することなく固化が完了する。また反応生成物の性質も両者で異なるので、複合化による相互作用が固着力増加に寄与するものと考えられる。

【0013】上記したように、本発明においてポリシラザン類及びポリカルボシラン類化合物の双方を併用することによる相互作用により、適用温度全域で所定の高接着強度を保持することができる。本発明において、ポリシラザン類化合物及びポリカルボシラン類化合物は、それぞれ一方の化合物に対し他方の添加量を 5 重量% 以上とし、重量比で 1 : 0.05 ~ 40、好ましくは 1 : 40 1 ~ 20 で混合して用いるのがよい。

【0014】本発明のセラミック接合用コンパウンドにおいて、上記ポリシラザン化合物及びポリカルボシラン化合物の混合物に、更にセラミック粉末を添加混合する。添加するセラミック粉末としては、被接合セラミックスと同種のセラミックス粉末または被接合セラミックスとその熱膨張係数が所定の範囲で整合する異種のセラミックス粉末を用いるのが好ましい。セラミック接合コンパウンドを、ポリシラザン類化合物及びポリカルボシラン類化合物の混合物のみから構成した場合、被セラミックスの接合面が極めて小さな時には良好な接合体が得

られるが、面積が大きくなると剥がれを生じ、良好な接合体を得ることが困難であった。発明者は、その主な原因が、接合後のセラミックス焼成時に、これらの化合物がSiN、SiC、SiO<sub>2</sub>等化合物に変化し、その際に水素や炭化水素等の有機物が離脱または燃焼、揮散し体積収縮が起こり、接合部に隙間やひび割れが発生することを知見した。本発明は、ポリシラザン類化合物及びポリカルボシラン類化合物の混合物にセラミック粉末を添加することにより、上記の焼成時の体積収縮を軽減すると共に、接合強度の向上を図ることができたものである。

【0015】本発明において、被接合セラミックスと同種のセラミックス粉末を用いると、特に良好な接合状態を得ることができる。接合層と被接合セラミックスとの熱膨張差がなくなるために、セラミックス接合体の熱歪みが軽減されるためと推定される。また、被接合セラミックスと同種でなく、異種であっても熱膨張係数がほぼ同様、または、その差が $1 \times 10^{-6}$ 以下のセラミック粉末でも高接合強度の接合体を得ることができる。ポリシラザン類化合物及びポリカルボシラン類化合物の混合物に加えられる被接合セラミックスと同種のセラミック粉末とは、被接合セラミックスと同種のセラミックス粉末をいう。例えば、シリコンの接合にはシリコン粉末、SiCにはSiC粉末、SiNにはSiN粉末、アルミナに対してはアルミナ粉末、ジルコニアにはジルコニア粉末等である。一方、熱膨張係数の整合する異種のセラミック粉末としては、被接合セラミックスとは異なり、それぞれの平均熱膨張係数の差が $1 \times 10^{-6}$ 以下であるセラミック粉末で、例えばシリコン、SiC、SiN、窒化アルミニウム等の各種セラミックス材料中から適宜選択することができる。例えば、被接合セラミックスの窒化アルミニウムに対し、SiNやシリコンの粉末等を選択することができる。被接合セラミックスと異種セラミックス粉末との平均熱膨張係数の差が $1 \times 10^{-6}$ を超えると、得られるセラミックス接合体における熱歪みが大きくなり、剥がれ等の不都合が生じるため好ましくない。

【0016】セラミック粉末の添加量は、上記化合物混合物に対して重量比で1:2~40、好ましくは1:4~20で添加する。化合物混合物の総量に対するセラミックス粉の重量比が2以下であると焼成時のひび割れ防止等の効果が十分でなく、40を超えると接合強度が低下し実用的でない。添加するセラミックス粉末の粒度は、適用する塗布手段や接合物の形状等により適宜選択することができる。また、大きな隙間の充填等には、粒度の大きいセラミックス粉を用いることにより、乾燥後の収縮が少なく良好な結果を得ることができる。この場合、混練、生成した接合用コンパウンドの保管時に、セラミック粉末が沈降分離し易い等の問題を生じる場合があり、通常は平均粒径100μm以下のセラミック粉末

を用いるのが好ましい。

【0017】本発明のコンパウンドは、上記ポリシラザン類及びポリカルボシラン類化合物混合物に、上記したセラミック粉末を添加して得た粉末混合物と、キシレン等の有機溶媒を添加して十分混練してスラリーとする。溶媒の種類や、固体分と溶媒との混合比は、接合時の各条件に応じて適宜選択することができる。これらは、塗布等の作業性に関係し、一般に、溶媒の分量が少ないほうが乾燥が簡単で乾燥後の体積減少も少なく良好な結果を得ることができる。しかし、溶媒が少なすぎると流动性が低下し、塗布作業が難しくなる。そのため、通常、上記のポリシラザン類及びポリカルボシラン類化合物混合物とセラミック粉末との粉末混合物と溶媒とを、1:0.05~4.0重量比で混合するのがよい。高流動性を付与するためには、溶媒の液体成分が20重量%以上となるように溶媒を添加するのが好ましい。本発明において、作業性改善の目的で、上記の粉末混合物、溶媒の他、適量の界面活性剤や増粘剤を加えてても良い。

【0018】上記のようにして得られる本発明のセラミック接合用コンパウンドは、刷毛やデスペンサー等を使用し、各被接合セラミックスの接合面に一定量を塗布や注入等することにより接合部を形成することができる。塗布等した後、溶媒が蒸発・固化する以前に、各被接合セラミックスの接合部を突き合わせ、必要に応じ加熱して乾燥させる。更にその後、窒素、アルゴン等の不活性ガス雰囲気中、または空気等の酸素含有ガス雰囲気内で、所定の温度に加熱、焼成することにより、目的の高耐熱性、高強度接合のセラミック接合体を得ることができる。

### 【0019】

【実施例】以下、本発明を実施例に基づき詳細に説明する。但し、本発明は下記実施例により制限されるものでない。

#### 実施例1~9及び比較例1

ポリシラザンをオートクレーブ中で加熱して得たポリカルボシランを、分子量1700~2100のペルヒドロポリシラザンに対し、表1に示した各重量割合で混合して化合物混合物を得た。得られた混合物に、平均粒径20μmのシリコン粉末を、混合物との重量比が1:5の割合で添加し、ポリシラザン、ポリカルボシラン及びシリコンからなる混合粉末を得た。更に、得られた混合粉末固体分に対して、重量比1:0.5になるようにキシレンを加え、ボールミルで4時間混練して接合用コンパウンドをそれぞれ作成した。作成した接合用コンパウンドは各々約30gであった。

【0020】また、端面を平面に仕上げた直径10mmφ、長さ30mmのシリコン棒を用意した。次いで、一のシリコン棒の端面に上記で得られた各接合用コンパウンドを石英ガラス棒で塗りつけ接合部を形成した後、他のシリコン棒の端面と合わせて押付け接着させた。接着

7

したシリコン接着体を70°Cで3時間乾燥させて接合部を固着させた。その後、固着したシリコン接着体を窒素ガス雰囲気中で表1に示した各温度でそれぞれ焼成した。焼成、形成したシリコン接合体の各引張強度を測定\*

\* した。その結果を表1に示した。

{0021}

【表1】

8

六

実施例	ボリカボシラン /ボリシラサン 重量比	焼成温度 (°C)						
		120	300	500	800	1000	1350	
		引張り強度(MPa)						
実施例	1	0.05	0.2	0.5	1	2	10	40
	2	0.1	0.3	0.5	1	2.5	10	50
	3	0.5	0.5	0.6	1	2.5	10	50
	4	1	0.5	0.8	1.2	3	15	80
	5	5	0.6	1	1.2	3.5	20	100
	6	10	0.6	1	1.2	3	20	100
	7	15	0.5	0.5	1	2	15	80
	8	20	0.5	0.5	1	2	10	80
	9	40	0.5	0.3	0.5	1.5	5	30
比較例	1	0	0	0.1	0.5	1.5	3	10

【0022】上記実施例及び比較例から明らかなように、ポリカルボシランを添加しないでポリシラザン単独の化合物から接合コンパウンドを作成した場合には、いずれの焼成温度においても引張強度が低く、特に120°C及び1350°Cでの焼成後の引張強度が極めて低いことが分かる。一方、ポリカルボシラン/ポリシラザン重量比が0.2~4.0、特に0.1~2.0で混合された接合コンパウンドが、ポリシラザン単独のものに比して、焼成温度120~1350°Cで処理された後の引張強度がいずれも向上していることが分かる。

### 【0023】実施例1

ポリカルボシラン／ポリシラザン重量比を0.3とした以外は実施例1と同様にして接合用コンパウンドを作成した。得られた接合用コンパウンドを直径1.0mmの一つの塗化珪素棒の端面に塗り、他の塗化珪素棒の端面と突き合わせ接着した。その後、室温で乾燥し、更に空気中250°Cで熱処理した。熱処理後の接着塗化珪素棒、※50

※は、実施例1と同様に測定し引張強度0.5 MPaの接合強度を有していた。次いで、上記で得た接着剤を窒素ガス雰囲気中で1000°Cで焼成した結果、引張強度10 MPaの接合強度を有していた。また、焼成温度1350°Cでは引張強度100 MPaの接合強度が得られた。

40 【0024】実施例11～17及び比較例2～3  
平均分子量約1300のヘキサメチルシクロトリシラザン重合体に対して、実施例1で使用したポリカルボシランを重量比1:0.2の割合で秤量して添加して化合物の混合物を得た。得られた混合物に平均粒径2μmの炭化珪素粉末を表2に示した重量割合で添加して混合粉末を得た。更に、トルエン/ヘキサン比が5/1の混合溶媒に、混合溶媒と同重量の上記で得た混合粉末を加えて、ボールミルで良く混練して接合用コンパウンドを作成した。一方、5×5×25(mm)の炭化珪素セラミックス角棒を用意し、上記のようにして作成した接合用

コンパウンドを用い、実施例1と同様にして、 $5 \times 5$  (mm) の端面に塗布、2本の炭化珪素セラミックス角棒の端面接着した。次いで、室温で乾燥した後、アルゴンガス雰囲気中で表2に示した各温度で焼成し、曲げ強\*

\* 度を、四点曲げ加重法を用い測定した。その結果を表2に示した。

〔0025〕

【表2】

実 施 例	SiC/ 化合物混合物 重量比	焼成温度 (°C)					
		120	300	500	800	1000	1200
		曲げ強度 (MPa)					
11	2	0.4	0.7	1.0	1.5	3	10
	5	0.4	0.7	1.2	2.0	10	30
	10	0.5	0.8	1.5	2.5	20	80
	15	0.5	0.8	1.5	2.5	20	80
	20	0.5	1.0	2.0	2.5	20	80
	30	0.8	1.0	1.5	2.0	10	30
	40	0.5	0.5	1.0	1.0	5	10
比較例	0	0.3	0.5	0.2	0.3	0.5	0.5
	50	接合せず					

【0026】上記実施例及び比較例より明らかなように、ポリシラザン類及びポリカルボシラン類の化合物混合物にセラミック粉末のSiCを添加しない比較例2の接合用コンパウンドは、本発明の接合用コンパウンドが焼成温度の上昇と共に曲げ強度が増大するのに対し、焼成温度によることなく焼成後の曲げ強度は低く、且つ変化することもない。また、化合物混合物に対し、SiCを40倍を超えて、50倍添加した比較例3の接合用コンパウンドは、接着能自体が発現されないことが分かる。

### 【0027】实施例18

実施例1で用いたペルヒドロポリシラザン5 g、平均分子量約40000のポリシラスチレン5 g、平均粒径20  $\mu\text{m}$  のアルミナ粉末80 g、平均粒径1  $\mu\text{m}$  のアルミナ粉末45 g、及び、キシレン30 gを混合してボールミルで混練し、接合用コンパウンドを得た。一方、5×5×25 (mm) のアルミナセラミックスの角棒を用意し、上記のようにして作成した接合用コンパウンドを用い、実施例1と同様にして、5×5 (mm) の端面に塗布、2本のアルミナセラミックス角棒の端面接着した。次いで、室温で乾燥して固着した。各アルミナセラミック

30※ク固定棒を空気中で500℃及び1200℃でそれぞれ焼成し、実施例11と同様にして曲げ強度を測定した。その結果、それぞれ3 MPa及び60 MPaの曲げ強度を有していた。

### 【0028】实施例19

平均分子量約2000のトリメチルヒドロポリシラザン50g、ポリカルボシラン5g、平均粒径5μmのシリコン粉末200g、ジエチレングリコールブトキシアセテート60g及びキシレン30gを混合し、ボールミルで十分混練して接合用コウンパウンドを得た。得られた

40 接合用コンパウンドを用い、 $30 \times 30$  (mm) 角で、厚さ 0.8 mm の窒化アルミニウムのセラミック板にスクリーン印刷し、その上に同じ大きさのシリコンセラミック板をのせて圧接し、乾燥させて固着した。得られたセラミック固着板を窒素ガス雰囲気中で 1200°C で加熱焼成した結果、強固な窒化アルミニウムとシリコンとの接合体が得られた。

【0029】

【発明の効果】本発明のセラミック接合用コンパウンドは、常温乾燥で十分な固着力を有し、且つ、焼成等の高温加熱処理時にもその固着力を保持すると共に、接合強

## 11

度を増加させて、接合部の欠損や剥れ等を生じることなく種々のセラミックスを簡便な工程で強固なセラミック接合体として大型化及び複雑形状化して得ることができる。更に、本発明のセラミック接合用コンパウンドは、セラミックス粉末の他、主にSi、O、N、C及びHの元素から構成される化合物を構成成分として用いることができ、半導体汚染物の混入を極力抑制することができ、半導体製造工程の各種セラミック部材の接合材や充

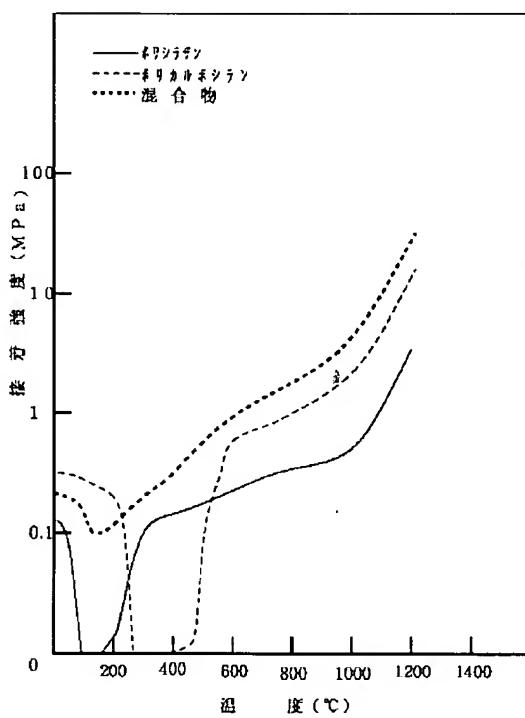
## 12

填材としても有用である。また、形成される接合層部は、高純度、高耐熱性、高耐薬品性等に優れる。

## 【図面の簡単な説明】

【図1】ポリシラザン類化合物、ポリカルボシラン類化合物またはポリシラザン類化合物及びポリカルボシラン類化合物の等量混合物における焼成温度と接着強度の関係図である。

【図1】



\* NOTICES \*

JPO and NCIP are not responsible for any  
damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

## DETAILED DESCRIPTION

---

### [Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Industrial Application] This invention relates to the compound suitable for junction of various wide range ceramics [ , such as non-oxide ceramics, and an alumina, JIRUKONIYA, a mullite, ] of oxide ceramics, such as a composite which combined silicon, silicon carbide, silicon nitride, aluminium nitride, and these, and restoration of those opening sections.

[0002]

[Description of the Prior Art] thermal resistance of ceramics is high, it is inactive strongly chemically, and can be extremely prepared to a high grade -- etc. -- there is the advantage and it is used in many fields as an advanced material. It is common to usually perform processing of these ceramics in the shaping phase of the material before baking etc. However, since a big volume change happens before and after baking of a ceramic Plastic solid, it is difficult to raise dimensional accuracy only by processing before baking. Therefore, it can also rework so that a target configuration and precision may be acquired after baking, but since [ strong as mentioned above and weak ] workability is bad, as for the ceramics, the configuration and magnitude are restricted.

[0003] Moreover, forming a complicated configuration object and a large-sized article is also performed from the former by assembling each part article material classified so that the target ceramic configuration object might be constituted, and joining. In this case, if each ceramic baking components material is unjoinable to a predetermined configuration etc., holding the advantage of the ceramics of excelling in thermal resistance, chemical durability, etc., the utility value as original ceramics is spoiled. Therefore, various operations also of the approach of having thermal resistance are carried out as a ceramic conjugation method. For example, there are a conjugation method with solder glass, a metal conjugation method by metallizing, etc. Moreover, some cement system inorganic materials, such as alumina cement, are used as a high thermal-resistance jointing material for corrugated fibreboard, for example.

[0004]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] However, the ingredient which can apply both the above-mentioned solder glass junction and a metal conjugation method was restricted, and neither thermal resistance nor corrosion resistance was also enough. And at the time of junction, an advanced technique is needed upwards, and it is restricted to what also has the simple configuration of a joint. Moreover, although the inorganic material system jointing material for corrugated fibreboard had the advantage which can fix at a room temperature, in order to consider as refractoriness, in a baking process, it usually needed to calcinate at the elevated temperature 1000 degrees C or more, and the fixing force generated the crack etc., and was not able to be damaged [ it was able to decrease remarkably, or ] in many cases, and it was able to be used only for the ingredient and application which were restricted extremely. Moreover, to an inorganic material system jointing material for corrugated fibreboard, predetermined high grade-ization may be unable to be attained as a component or an impurity, including various element components in many cases.

[0005] This invention can join various ceramics firmly at a simple process in view of the present condition of the conjugation method of the above-mentioned conventional ceramics. Also before baking and in a baking process, it has sufficient bonding strength. And a high grade, The ceramic jointing material for corrugated fibreboard which can form the outstanding junctional zone and the outstanding zygotes, such as high thermal resistance and high chemical resistance, Namely, it aims at forming the large-sized article and complicated configuration object of the ceramics which fixing junction was firmly carried out and was unified further by that cause for the purpose of offering the compound for ceramic junction simple.

[0006] The artificer completed this invention, as a result of examining various requirements as a jointing material for corrugated fibreboard for attaining the above-mentioned purpose, and inquiring wholeheartedly so that the two following points may be satisfied especially. That is, it is the jointing material for corrugated fibreboard with which reinforcement fixing force with (1) jointing material for corrugated fibreboard sufficient at a room temperature at the time of junction can be discovered, and the fixing force is held also in a baking process. That is, when there is no

possibility that a joint may carry out balking etc. in a baking process, the special fixture for baking becomes unnecessary. Moreover, a limit in the configuration or magnitude of a zygote is not received. Furthermore, the baking process after junction can also be skipped by making service temperature of a ceramic zygote into a burning-temperature region depending on the case.

(2) As a jointing material for corrugated fibreboard for ceramics of which a high grade is required, contaminations, such as transition metals and alkali-metal ion, should not be included as the component or impurity, for example. The ceramics has very many applications of which high grades, such as electronic parts and a member for semiconductor device manufacture, are required, and it is necessary to make it the above-mentioned contamination not mix a raw material material in the production process of the ceramics, or the phase of processing at first in these use, either. Therefore, when using especially the joined ceramic zygote for processing of a semiconductor device, it is a contamination and is made to decrease [ all of except for elements, such as Si, O, N, C, and H, ] as much as possible.

[0007]

[Means for Solving the Problem] According to this invention, the compound for ceramic junction characterized by consisting of a polysilazane compound, a polycarbosilane compound, ceramic powder, and a solvent is offered.

[0008]

[Function] This invention is constituted as mentioned above, polysilazane and a polycarbosilane compound dissolve in a predetermined solvent, and form an adhesive solution, spreading etc. makes the solution the joint of the joined ceramics, by making it dry, the fixing junction of the ceramics can be carried out easily, and the fixing force is held also in subsequent baking. moreover -- if polysilazane and a polycarbosilane compound are heated under inert gas or an oxygen content gas ambient atmosphere -- the ambient atmosphere -- SiN, SiC, SiON, and Si and SiO<sub>2</sub> etc. -- a stable compound can be chemically generated with thermal resistance, a strong junctional zone can be formed with the intermingled ceramic powder, and the firm zygote of ceramics can be obtained. Moreover, polysilazane and a polycarbosilane compound are chemically compoundable, and high-grade-izing is easy for them, and they do not serve as a pollution source excluding a contamination element harmful to a semi-conductor etc. as a jointing material for corrugated fibreboard of various ceramics, such as a semi-conductor member.

[0009] Hereafter, this invention is explained to a detail. The polysilazane and the polycarbosilane compound which are used by this invention are well known as a precursor of silicon carbide (SiC) or silicon nitride (SiN). Polysilazane can use the compound usually used as precursors of SiN or SiC, such as a polymer of the various molecular weight of perhydro polysilazane, and various polymers of methyl polysilazane. Moreover, polycarbosilanes are [RR'SiCH<sub>2</sub>]<sub>n</sub> (however, R and R' is R!=R' and is H, CH<sub>3</sub>, or C six H<sub>5</sub>). It is expressed with n= five to 5000 or more general . formulas, and the compound used from the former as a precursor of SiC can be used.

[0010] According to an artificer's knowledge, after each of above-mentioned polysilazane and polycarbosilane compounds dissolves in organic solvents, such as a xylene, although the fixing force of extent which is ordinary temperature is produced when a solvent is removed, the fixing force changes with temperature rises. That is, experiment examination of the relation between temperature and fixing reinforcement was carried out about each of a polysilazane compound, a polycarbosilane compound, and both ratio about 1:1 mixture. The result was typically shown in drawing 1 . According to drawing 1 , although almost lost at about 100-200 degrees C, the fixing force of a polysilazane compound, i.e., bond strength, increases rapidly from near 200 degree C, and the rate of increase falls and it begins to rise from near 500 degree C further again at 900-1000 degrees C. If it is a viscous liquid from a solid-state and temperature rises with the class and polymerization degree near a room temperature, while the liquid of low viscosity will generate a polysilazane compound, in order that a decomposition reaction may occur and very weak gel may generate, bond strength falls. Above 200 degrees C, in order that a polymerization may progress and gel may solidify, bond strength rises, but in order that a pyrolysis may be intense, the organic substance may secede from near 500 degree C mostly and residue may porosity-ize, the rise of bond strength becomes slow. Moreover, at about 900-1000 degrees C, sintering and crystallization of an inorganic compound which the pyrolysis reaction completed and generated advance, and bond strength is presumed to be what goes up still more rapidly.

[0011] If the fixing force increases in temperature above about 400 degrees C although the fixing force is lost at about 200-400 degrees C as a polycarbosilane compound is shown in drawing 1 on the other hand, and 600 degrees C is exceeded, a rate of strength increase will become small, and it begins to rise further again at 900-1000 degrees C like a polysilazane compound. Most polycarbosilane compounds are solid-states near a room temperature, it is usually stable to near 200 degree C, and the fixing force is held. However, if a temperature up is carried out to 200 degrees C or more, it will become the liquid of low viscosity, a polymerization reaction will begin to occur, bond strength will be lost, but above 400 degrees C, in order to macromolecule-ize, the fixing force increases with temperature. Moreover, since a gelation reaction does not usually occur, it becomes high intensity from the case of polysilazane. If 600 degrees C is exceeded, like polysilazane, the pyrolysis reaction of a solidification object advances, and although a rate of strength increase falls in order to porosity-ize, bond strength will rise rapidly with temperature again above about 900-1000 degrees C which a pyrolysis reaction completes.

[0012] Moreover, when a polysilazane compound and a polycarbosilane compound are used independently and both are mixed and used like this invention on the other hand although the temperature region whose fixing force is almost lost in the middle of a temperature up, respectively appears so that clearly from drawing 1, it turns out that the bond strength which exceeds both average mostly in a total-temperature region is obtained. Although the reason is not clear, near 100-200 degree C the fixing force of polysilazane of is lost, since polycarbosilane is solidification or the liquid of high viscosity, gelation of polysilazane is barred, and since a polymerization reaction advances in the direction which macromolecule-izes and viscosity increases, the fixing force does not reduce it. Moreover, near 200-400 degree C the fixing force of polycarbosilane of is lost, the polycarbosilane fused to a polymerization and the solidified polysilazane acts as a plasticizer, compensates brittle \*\*, and, on the other hand, increases reinforcement. Solidification is completed at an elevated temperature 600 degrees C or more, without a gas evolution rapid as the whole not happening, but structure breaking, since both decomposition temperature differs. Moreover, since the properties of a resultant also differ in both, it is thought that the interaction by compound-izing contributes to the increment in the fixing force.

[0013] As described above, high bond strength predetermined in the application temperature whole region can be held by the interaction by using together the both sides of polysilazane and a polycarbosilane compound in this invention. In this invention, a polysilazane compound and a polycarbosilane compound make the addition of another side 5 % of the weight or more to the compound which is one side, respectively, and it is preferably good 1:0.05-40 and to mix by 1:0.1-20 and to use at a weight ratio.

[0014] In the compound for ceramic junction of this invention, addition mixing of the ceramic powder is carried out further at the mixture of the above-mentioned polysilazane compound and a polycarbosilane compound. It is desirable to use the joined ceramics, ceramic powder of the same kind or the joined ceramics, and the ceramic powder of a different kind that the coefficient of thermal expansion adjusts in the predetermined range as ceramic powder to add. Although the good zygote was obtained when a ceramic junction compound was constituted only from mixture of a polysilazane compound and a polycarbosilane compound, and the plane of composition of the ceramics-ed was very small, it was difficult to produce peeling, if area becomes large, and to obtain a good zygote. an artificer -- the main cause -- the time of ceramic baking after junction -- these compounds -- SiN, SiC, and SiO<sub>2</sub> etc. -- it changed to the compound, and on that occasion, it broke away or burned, the organic substance, such as hydrogen and a hydrocarbon, vaporized, the volumetric shrinkage happened, and the knowledge of a clearance and a crack occurring in a joint was carried out. From that of adding ceramic powder into the mixture of a polysilazane compound and a polycarbosilane compound, this invention can aim at improvement in bonding strength while mitigating the volumetric shrinkage at the time of the above-mentioned baking.

[0015] In this invention, if the joined ceramics and ceramic powder of the same kind are used, a good junction condition can be acquired especially. Since the differential thermal expansion of a junctional zone and the joined ceramics is lost, it is presumed because the heat distortion of a ceramic zygote is mitigated. Moreover, even if it is not so of the same kind as the joined ceramics and is different species, 1xten to six or less ceramic powder can obtain [ the difference ] the zygote of high bonding strength almost similarly [ a coefficient of thermal expansion ]. The joined ceramics added to the mixture of a polysilazane compound and a polycarbosilane compound and ceramic powder of the same kind say the joined ceramics and ceramic powder of the same kind. For example, it is [ as opposed to / in silicon powder and SiC / SiC powder / as opposed to / in junction of silicon / to SiN / SiN powder and an alumina ] zirconia powder etc. at alumina powder and a zirconia. On the other hand, as ceramic powder of a different kind which a coefficient of thermal expansion adjusts, unlike the joined ceramics, it is the ceramic powder whose difference of each average coefficient of thermal expansion is 1x10 to six or less, for example, can choose suitably from various ceramic ingredients, such as silicon, SiC and SiN, and aluminum nitride. For example, SiN, the powder of silicon, etc. can be chosen to the aluminum nitride of the joined ceramics. If the difference of the average coefficient of thermal expansion of the joined ceramics and different-species ceramic powder exceeds 1x10-6, since the heat distortion in the ceramic zygote obtained becomes large and un-arranging, such as peeling, arise, it is not desirable.

[0016] the addition of ceramic powder -- the above-mentioned compound mixture -- receiving -- a weight ratio -- 1:2-40 -- it adds by 1:4-20 preferably. Effectiveness, such as crack prevention at the time of baking, is not enough in the weight ratio of ceramic powder to the total amount of compound mixture being two or less, and bonding strength falls and is not practical if 40 is exceeded. The grain size of the ceramic powder to add can be suitably chosen with a spreading means to apply, the configuration of solder, etc. Moreover, a result with it can be obtained by using ceramic powder with a large grain size for restoration of a big clearance. [ there is little contraction after desiccation and good ] In this case, it is desirable to produce the problem of ceramic powder tending to sediment and to usually use ceramic powder with a mean particle diameter of 100 micrometers or less at the time of storage of the compound for junction kneaded and generated.

[0017] The compound of this invention adds the powder mixture which added and obtained the above-mentioned ceramic powder into the above-mentioned polysilazane and polycarbosilane compound mixture, and organic solvents, such as a xylene, kneads them enough, and let it be a slurry. The class of solvent and the mixing ratio of solid content

and a solvent can be suitably chosen according to the monograph affair at the time of junction. With regards to workability, such as spreading, generally, desiccation is simple for the way with few daily doses of a solvent, and these can obtain a good result also with few volume decreases after desiccation. However, if there are too few solvents, a fluidity will fall and spreading will become difficult. Therefore, it is usually good to mix the above-mentioned powder mixture and the above-mentioned solvent of polysilazane and polycarbosilane compound mixture, and ceramic powder by 1:0.05-40-fold quantitative ratio. In order to give a high fluidity, it is desirable to add a solvent so that the liquid component of a solvent may become 20 % of the weight or more. In this invention, the surfactant and thickener of optimum dose besides the above-mentioned powder mixture and a solvent may be added for the purpose of a workability improvement.

[0018] The brush, a dispenser, etc. can be used for the compound for ceramic junction of this invention obtained as mentioned above, and when spreading, impregnation, etc. make a constant rate the plane of composition of each \*\*\*\*\* SERAMIKUSSU, it can form a joint. After carrying out spreading etc., before a solvent evaporates and solidifies, the joint of each \*\*\*\*\* ceramics is compared and it is made to heat and dry if needed. Furthermore, the target high thermal resistance and the ceramic zygote of high intensity junction can be obtained by heating and calcinating to predetermined temperature after that in inert gas ambient atmospheres, such as nitrogen and an argon, or within oxygen content gas ambient atmospheres, such as air.

[0019]

[Example] Hereafter, this invention is explained to a detail based on an example. However, this invention is not restricted by the following example.

The polycarbosilane which heated and obtained examples 1-9 and example of comparison 1 polysilane in the autoclave was mixed to the perhydro polysilazane of molecular weight 1700-2100 at each weight rate shown in Table 1, and compound mixture was obtained. The mixed powder which a weight ratio with mixture adds silicon powder with a mean particle diameter of 20 micrometers into the obtained mixture at a rate of 1:5, and becomes it from polysilazane, polycarbosilane, and silicon was obtained. Furthermore, to the obtained mixed powder solid content, the xylene was added so that it might become the weight ratio 1:0.5, and it kneaded with the ball mill for 4 hours, and the compound for junction was created, respectively. The created compound for junction was about 30g respectively.

[0020] Moreover, diameter 10mmphi which made the flat surface to the end face, and a silicon rod with a die length of 30mm were prepared. Subsequently, after applying each compound for junction obtained above by the end face of the silicon rod of 1 with a quartz-glass rod and forming a joint, it was made to push and paste up together with the end face of other silicon rods. The pasted-up silicon adapter was dried at 70 degrees C for 3 hours, and the joint was made to fix. Then, the silicon adapter which fixed was calcinated, respectively at each temperature shown in Table 1 in nitrogen-gas-atmosphere mind. Each tensile strength of the silicon zygote calcinated and formed was measured. The result was shown in Table 1.

[0021]

[Table 1]

実施例		ポリカーボシラン / ポリシラツン 重量比	焼成温度 (°C)					
			120	300	500	800	1000	1350
			引張り強度(MPa)					
1	0.05	0.2	0.5	1	2	10	40	
2	0.1	0.3	0.5	1	2.5	10	50	
3	0.5	0.5	0.6	1	2.5	10	50	
4	1	0.5	0.8	1.2	3	15	80	
5	5	0.6	1	1.2	3.5	20	100	
6	10	0.6	1	1.2	3	20	100	
7	15	0.5	0.5	1	2	15	80	
8	20	0.5	0.5	1	2	10	80	
9	40	0.5	0.3	0.5	1.5	5	30	
比較例	1	0	0	0.1	0.5	1.5	3	10

[0022] When a junction compound is created from a polysilazane independent compound without adding polycarbosilane so that clearly from the above-mentioned example and the example of a comparison, it turns out that tensile strength is low also in which burning temperature, and the tensile strength after baking at 120 degrees C and 1350 degrees C is very low especially. It turns out that each tensile strength after 0.2-40, and the junction compound mixed especially by 0.1-20 were processed for polycarbosilane / polysilazane weight ratio with the burning temperature of 120-1350 degrees C as compared with the polysilazane independent thing is improving on the other hand.

[0023] The compound for junction was created like the example 1 except having set example 10 polycarbosilane / polysilazane weight ratio to 0.3. The obtained compound for junction was applied to the end face of the silicon nitride rod with a diameter [ phi ] of 10mm of 1, and it compared with the end face of other silicon nitride rods, and pasted up. Then, it dried at the room temperature and heat-treated at 250 degrees C among air further. The adhesion silicon nitride rod after heat treatment was measured like the example 1, and had the bonding strength of tensile strength 0.5MPa. Subsequently, as a result of calcinating the adhesion silicon nitride rod obtained above at 1000 degrees C in nitrogen-gas-atmosphere mind, it had the bonding strength of tensile strength 10MPa. Moreover, in the burning temperature of 1350 degrees C, the bonding strength of tensile strength 100MPa was obtained.

[0024] To the hexa methyl SHIKUROTORI silazane polymer of two to examples 11-17 and example of comparison 3 mean molecular weight 1300 [ about ], weighing capacity of the polycarbosilane used in the example 1 was carried out at a rate of the weight ratio 1:0.2, it added, and the mixture of a compound was obtained. It added at a weight rate which showed silicon carbide powder with a mean particle diameter of 2 micrometers to the obtained mixture in Table 2, and mixed powder was obtained. Furthermore, toluene / hexane ratio added a mixed solvent and the mixed powder obtained by the above of this weight to 5/1 of mixed solvents, kneaded well with the ball mill, and created the compound for junction. the compound for junction which prepared the silicon-carbide-ceramics square bar of 5x5x25 (mm), and was created as mentioned above on the other hand -- using -- an example 1 -- the same -- carrying out -- the end face of 5x5 (mm) -- edge gluing of spreading and two silicon-carbide-ceramics square bars -- it carried out. Subsequently, after drying at a room temperature, it calcinated at each temperature shown in Table 2 in the argon gas

ambient atmosphere, and flexural strength was measured using the four point bending weighting method. The result was shown in Table 2.

[0025]

[Table 2]

SiC/ 化合物混合物 重量比		焼成温度 (°C)						
		120	300	500	800	1000	1200	
		曲げ強度 (MPa)						
実 施 例	11	2	0.4	0.7	1.0	1.5	3	10
	12	5	0.4	0.7	1.2	2.0	10	30
	13	10	0.5	0.8	1.5	2.5	20	80
	14	15	0.5	0.8	1.5	2.5	20	80
	15	20	0.5	1.0	2.0	2.5	20	80
	16	30	0.8	1.0	1.5	2.0	10	30
	17	40	0.5	0.5	1.0	1.0	5	10
比 較 例	2	0	0.3	0.5	0.2	0.3	0.5	0.5
	3	50	接合せず					

[0026] The flexural strength after baking is low, without the compound for junction of this invention depending the compound for junction of the example 2 of a comparison which does not add SiC of ceramic powder into the compound mixture of polysilazane and polycarbosilanes on burning temperature to flexural strength increasing with the rise of burning temperature so that more clearly than the above-mentioned example and the example of a comparison, and it does not change. Moreover, it turns out to compound mixture that, as for the compound for junction of the example 3 of a comparison added 50 times exceeding 40 times, the adhesion ability itself is not discovered in SiC.

[0027] Perhydro polysilazane 5g [ which was used in the example 18 example 1 ], polish lath CHIREN5g [ of a mean molecular weight 40000 / about ], 80g [ of alumina powder with a mean particle diameter of 20 micrometers ], 45g [ of alumina powder with a mean particle diameter of 1 micrometer ], and xylene 30g was mixed, it kneaded with the ball mill, and the compound for junction was obtained. the compound for junction which prepared the square bar of the alumina ceramics of 5x5x25 (mm), and was created as mentioned above on the other hand -- using -- an example 1 -- the same -- carrying out -- the end face of 5x5 (mm) -- edge gluing of spreading and two alumina-ceramics square bars -- it carried out. Subsequently, it dried and fixed at the room temperature. Each alumina ceramic fixing rod was calcinated at 500 degrees C and 1200 degrees C in air, respectively, and flexural strength was measured like the example 11. Consequently, it had the flexural strength of 3MPa(s) and 60MPa(s), respectively.

[0028] Trimethyl hydronium polysilazane 50g [ of example 19 mean molecular weight 2000 / about ], polycarbosilane 5g, 200g [ of silicon powder of 5 micrometers of mean diameters ], and diethylene-glycol butoxy acetate 60g and xylene 30g were mixed, it kneaded enough with the ball mill, and the KOUN pound for junction was obtained. Using the obtained compound for junction, it screen-stenciled to the ceramic plate of aluminium nitride with a thickness of 0.8mm, and the pressure welding of the silicon ceramic plate of the magnitude same on it is carried and carried out, it was dried on 30x30 (mm) square, and it fixed. As a result of carrying out heating baking of the obtained ceramic fixing plate at 1200 degrees C in nitrogen-gas-atmosphere mind, the zygote of firm aluminium nitride and silicon was obtained.

[0029]

[Effect of the Invention] While it has fixing force sufficient by ordinary temperature desiccation and holds the fixing

force also at the time of heating-at-high-temperature processing of baking etc., the compound for ceramic junction of this invention makes bonding strength increase, and without producing a deficit, peeling, etc. of a joint, at a simple process, as a firm ceramic zygote, it can enlarge and complicated-configuration-ize and it can obtain various ceramics. Furthermore, the compound which mainly consists of elements of Si, O, N, C, and H besides ceramic powder can be used for the compound for ceramic junction of this invention as a constituent, it can control mixing of a semi-conductor contamination as much as possible, and is useful also as the jointing material for corrugated fibreboard and filler of various ceramic members of a semi-conductor production process. Moreover, the junction layer formed is excellent in a high grade, high thermal resistance, high chemical resistance, etc.

---

[Translation done.]